

<報文>小型高圧移動層反応装置による還元鉄製造の基礎的研究(第1報) : 装置の試作, 性能および^{2,3}の実験結果

著者	高橋 愛和, 高橋 礼二郎
雑誌名	東北大学選鉱製錬研究所彙報 = Bulletin of the Research Institute of Mineral Dressing and Metallurgy, Tohoku University
巻	35
号	2
ページ	147-159
発行年	1980-03-06
URL	http://hdl.handle.net/10097/32781

小型高圧移動層反応装置による還元鉄製造の 基 礎 的 研 究 (第1報)

装置の試作, 性能および 2, 3 の実験結果

高 橋 愛 和* 高 橋 礼二郎*

Fundamental Studies on Reduced Iron Making by Using a Bench Scale Moving Bed Reactor for the Reduction at High Pressures. (1)

Construction of Apparatus, Its Performance and Some Experimental Results. By Yoshikazu TAKAHASHI and Reijiro TAKAHASHI

A non-external heating moving bed reactor, 0.13 m inner diameter and 2.0 m available height, was designed and constructed for the reduction of iron oxide pellets at high pressures. In the reactor, the mixtures of H_2 , CO and N_2 can be supplied at 1000°C maximum temperature, 8 kg/cm²G maximum pressure and 180 Nm³/hr maximum gas flow rate as reducing gas. The process variables such as the temperature, the pressure and the gas composition (H_2 , H_2O , CO, CH_4 , CO_2 and N_2) in the reactor can be measured at 7 levels along the axis of the moving bed.

Three cases of experiments were successfully performed; (1) 910°C preheated hydrogen was introduced at the pressure of 0.15 kg/cm²G, (2) 910°C preheated hydrogen was introduced at the pressure of 4.0 kg/cm²G, (3) 860°C preheated mixtures of 70% H_2 and 30% CO were introduced at the pressure of 0.2 kg/cm²G. These experiments were carried out under the conditions of flow rate of 54 Nm³/hr and of feed rate of 34.8 kg-pellets/hr. The longitudinal distribution of the process variables such as temperature, pressure, gas composition and reduction degree of pellets in the reactor was obtained. The results clearly showed the significant effect of the composition of the gas and the pressure of the reducing gas on the process variables.

This experimental apparatus was proved to be successful for the fundamental studies of the reduced iron making and of the properties of burden for direct reduction.

(Received November 9, 1979)

1. 緒 言

高炉によらない製鉄法, すなわち, 強粘結炭を必要とするコークスを使わない製鉄法は古くから研究開発の対象であったが 1969 年米国 Portland に Midrex 法によるシャフト炉が稼動して以来急速な発展をとげ, メキシコにおける HyL 法とともに実用期を迎えるに至っている¹⁾. わが国においてもナショナルプロジェクトである「高温還元ガス利用による直接製鉄」(通称原子力製鉄プロジェクト)が 1973 年から発足し, 多目的高温ガス炉との適合性より高圧によるシャフト炉プロセスが採用され, 1979 年までを第 1 期計画としての研究開発が行なわれている²⁾. この研究は固定層を用いた微分層モデルによりシャフト炉に近似させた条件下で実験を行なう方法であり, 実験操作, 副次反応の評価等に有用な知見が得られているがガス分析に高い精度が要求されているためその測定がむずかしい, 新日本製鉄(株)においては, 1976 年に吹込圧力 5 kg/cm²G, 500 ton/day 規模のモデルプラントを建設し, 高圧下でのシャフト炉の操作を行なった³⁾. また(株)神戸製鋼所は 1978 年カタルに Midrex プロセスによるシャフト炉を建設し操業を進めるかたわら, 内径

選鉱製錬研究所報告 第 799 号 昭和 54 年 10 月日本鉄鋼協会にて一部発表

* 東北大学選鉱製錬研究所

1) 西田信直: 鉄と鋼, **62** (1976), 705.

2) 宮下恒雄, 福島 勤, 佐野和夫, 坂本 登, 名雪利夫, 大関彰一郎: 鉄と鋼, **65** (1979), S 573.

3) 村木潤次郎, 大槻直樹, 香春陸夫, 宮下 覚, 井口正昭, 中村 隆: 鉄と鋼, **64** (1978), S 457.

0.25 m の反応管による移動層の実験を開始している⁴⁾。しかし、これらの操業や実験はいずれも操業のノウハウ、エンジニアリングデザインの確立を主眼としたものであり、シャフト炉内での還元および副次反応の解析および動力学モデルによる反応操作解析等の基礎的研究を目的としたものではない。

当研究所においては、や金化学工学研究部門において、1971 年以来内径 0.125 m の小型移動層反応装置が製作され、その後逐次改造を行ないながら、常圧下における H_2 ガスによる還元実験ならびにシミュレーション数式モデルによる理論的研究が進められてきた^{5)~7)}。また、著者らは酸化鉄ペレット単一粒子の常圧下における還元反応の速度論的研究を進めてきた^{8)~11)}が最近高圧下における還元反応の基礎研究にも着手しその成果を報告¹²⁾¹³⁾している。本装置はそれらの総合的な経験と知見に基づいて、高圧移動層による還元反応の操作と解析ならびに直接製鉄用原料の開発に関する基礎的研究を行なうことを目的として、(株)キカクの鳴澤勇平氏の協力を得て設計を行ない、 $8\text{ kg/cm}^2\cdot\text{G}$ までの実験ならびに H_2 -CO 混合ガスによる還元実験が可能な装置を製作した。本報では装置の試作と性能ならびに同装置による 2, 3 の実験結果について報告する。

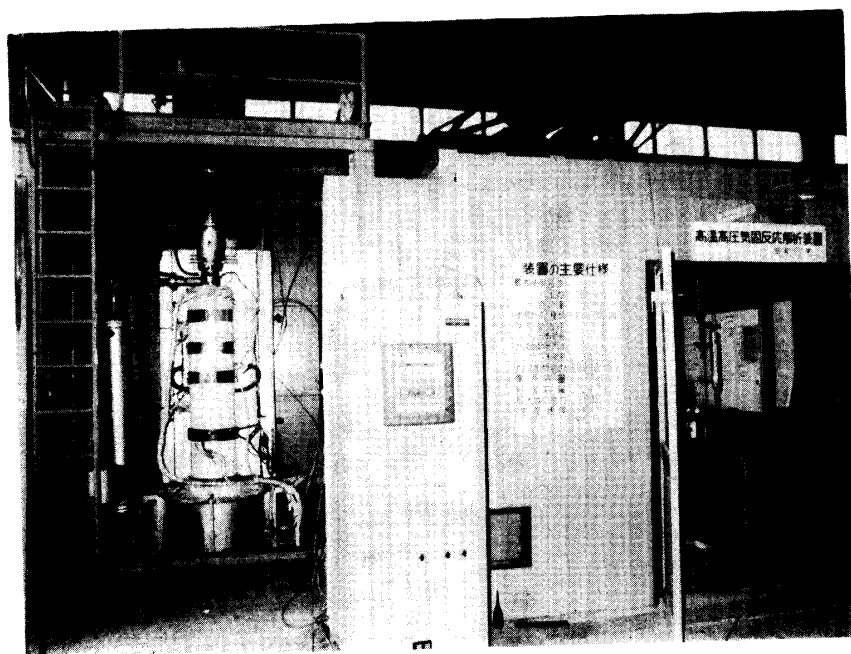


写真1 小型高圧移動層反応装置

2. 装置の構成と機能

2.1 概念設計

本装置は小型高圧移動層反応装置による酸化鉄のガス還元反応の実験的検討と移動層シミュレー

- 4) 成田貴一, 金子伝太郎, 木村吉雄, 竹中芳通, 亀岡義夫, 小野田 守, 田中英年, 稲田 裕: 鉄と鋼, **65** (1979), S 534.
- 5) 柳谷敏夫, 八木順一郎, 大森康男: 鉄と鋼, **63** (1977), S 7.
- 6) T. Yanagiya, J. Yagi and Y. Omori: Ironmaking & Steelmaking, No. 3 (1979), 93.
- 7) Y. Omori, J. Yagi and T. Yanagiya: The Seventh Japan-USSR Joint Symposium on Physical Chemistry of Metallurgical Processes, Moscow, USSR, (1979).
- 8) 高橋礼二郎, 八木順一郎, 大森康男: 鉄と鋼, **57** (1971), 1597.
- 9) R. Takahashi, J. Yagi and Y. Omori: Trans. ISIJ, **14** (1974), 26.
- 10) J. Yagi, R. Takahashi and Y. Omori: Trans. ISIJ, **14** (1974), 17.
- 11) 高橋礼二郎, 石井正夫, 高橋愛和: 選研集, **34** (1978), 95.
- 12) 黒豆伸一, 高橋礼二郎, 高橋愛和: 鉄と鋼, **66** (1980), 23 (掲載予定).
- 13) 高橋礼二郎, 黒豆伸一, 高橋愛和: 鉄と鋼, **66** (1980), No. 3 に掲載予定.

ジョン数式モデルによる理論解析を行なうことを目的として製作した。移動層による実験では吹込みガス温度、同圧力、同組成および原料の装入速度等の操作条件が広範囲に変化でき、とくに H_2 -CO 混合ガスによる高圧下の実験では還元反応とともに重要なメタンの生成および分解反応、炭素析出反応、水性ガスシフト反応など副次反応の還元反応速度に及ぼす影響および反応成績を解明する。さらに、本研究では直接製鉄用原料の還元性状の評価に関する実験的検討も行なう。一方、反応操作に関する理論解析の研究においては上記諸反応の反応速度定数ならびに総括伝熱係数などは移動層の還元実験とは独立な実験によって求め、それらのパラメータを移動層シミュレーション数式モデルに組み込み移動層による反応操作の理論解析を行なう。さきに述べたような目的を達成するための反応装置として次のような諸条件が必要であると考えた。

(1) 反応管径は酸化鉄ペレット直径の約10倍、有効長は2mとし、最高吹込ガス温度 $1000^{\circ}C$ 、同圧力 $8\text{kg/cm}^2\cdot G$ までの実験が可能であること。

(2) 反応管は断熱型とすること。

(3) 反応管高さ方向7個所に温度、圧力、ガス濃度を測定する計測管を取りつけること。

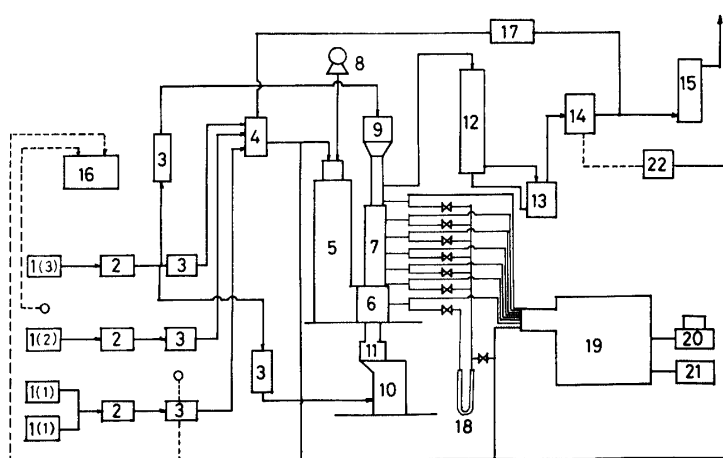
(4) 水蒸気を含む6成分のガスを採取し、その分析ができること。

(5) H_2 , N_2 および混合ガス ($CO+CO_2+CH_4$) の3系列のガスにより最大 $180\text{Nm}^3/\text{hr}$ の混合ガスを製造し、この混合ガスが反応管のガス吹込口において $1000^{\circ}C$ になるよう加熱できること。

本装置は以上の概念設計に基づいて製作した。

2.2 装置の構成

ガス流路に関するフローシートならびに主な性能をそれぞれ第1図と第1表に示す。第1図におい



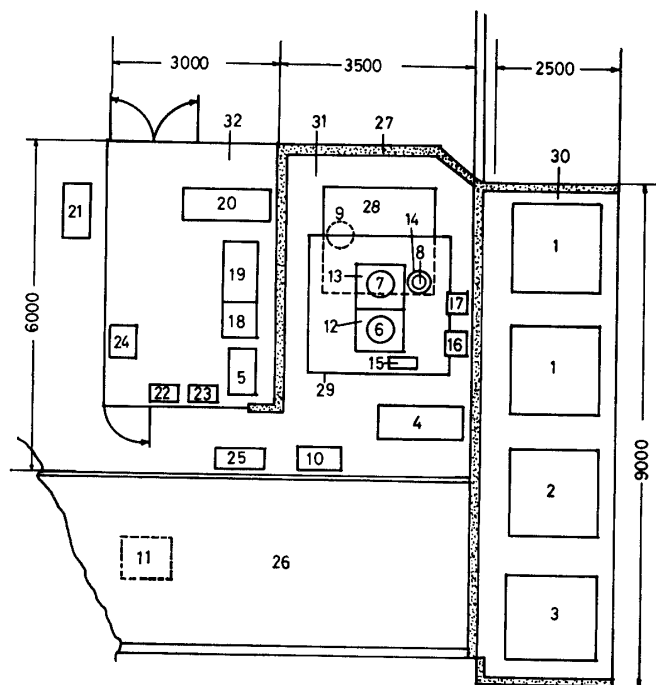
第1図 ガス流路に関するフローシート

1. ガスカードル (1) H_2 (2) $CO+CO_2+CH_4$ (3) N_2 2. 減圧弁 3. 流量計 4. ガス混合器 5. ガス加熱炉 6. 保温炉 7. 反応管 8. 定流量ポンプ 9. 試料タンク 10. 製品タンク 11. テーブルフィーダー 12. ガス冷却器 13. 水タンク 14. 圧力制御弁 15. 燃焼塔 16. ガス検知警報器 17. ブローア 18. 高圧マノメータ 19. ガスサンプリング装置 20. ガスクロマトグラフィー 21. 吸収びん 22. 圧力制御器

第1表 装置の性能

最高使用温度	$1000^{\circ}C$
同 圧 力	$8\text{kg/cm}^2 G$
同 ガス 流 量	$180\text{Nm}^3/\text{hr}$
使用ガスの種類	H_2 , CO , CO_2 , H_2O , CH_4 , N_2
反 応 管 内 径	0.13 m
同 有 効 長	2.0 m
ガス加熱管内径	0.12 m
同 有 効 長	3.4 m
ガス加熱能力	60,000 kcal/hr
電 源 容 量	180 KVA
給 水 容 量	$2.4\text{m}^3/\text{hr}$
最大換気能力	$1800\text{Nm}^3/\text{hr}$
試料タンク容量	0.2m^3

て、反応管は管壁からの熱損失を小さくするため、その周囲を 10cm の厚さに断熱材（アルミナ繊維、硅酸カルシウム）で被覆する。ガスカードルから供給する還元ガスは所定のガス組成および流量に調整したのちガス加熱炉で加熱して反応管内に供給する。一方、試料タンクおよび反応管内に装入した固体粒子は反応管下部のテーブルフィーダーで降下させる。固体粒子と向流接触して反応したガスはガス冷却器で冷却し、つぎに水分とダストを除去したのち圧力制御弁を通して燃焼塔で燃焼後系外に排気する。反応管高さ方向に温度、圧力、ガス濃度を測定するための計測管を 7 本取り付け非定常および定常状態におけるそれらの値を測定する。この装置の平面配置図を第 2 図に示す。この装置は安全性と作業性の観点からカードル室、実験室、計測制御室の 3 つに区分している。



第2図 装置の配置図

1. H_2 カードル 2. $(CO+CO_2+CH_4)$ カードル 3. N_2 カードル 4. ガス圧力制御装置 5. ガス流量制御装置 6. ガス加熱管 7. 反応管 8. ガス冷却器 9. 水タンク 10. 圧力制御弁 11. 燃焼塔 12. ガス加熱炉 13. 保温炉 14. 製品タンク 15. 定流量ポンプ 16. 給排水設備 17. 排気ダクト 18. 計器盤 19. 温度制御盤 20. ガスサンプリング装置 21. ガスクロマトグラフィ 22. ガスサンプリング装置制御盤 23. 圧力測定用マノメータ 24. ガス検知警報器 25. 分電箱 26. 電源室 27. 防護壁(200t×2500) 28. ビット(2500L) 29. 装置カバー 30. カードル室 31. 実験室 32. 計測制御室

の系列と同様であるため省略して破線で示している。

所要ガス量については (1), (2) 式の反応がそれぞれ単独または H_2 と CO の混合ガスで起こるものとし、反応管の出口温度で平衡までガスが利用されると仮定して最小限必要なガス量を計算すれば第 2 表となる。



一般に H_2 濃度が高く、反応管出口温度が低い場合 (CO 100% の場合は逆である) 所要ガス量は大きくなる。第 2 表において、 $H_2/CO=70/30$ 、所要ガス量 $1850 Nm^3/ton Fe$ の場合 2.3.4 で述べる最大処理量 $0.072 ton pellets/hr$ では約 $90 Nm^3/hr$ のガス供給が必要であり、ガス切替後 6hr の実験では合計 $540 Nm^3$ の還元ガスが必要となる。本装置の所要ガス量はこのように算定されたもので、カードル室内のガス量*は 1 回の実験操作に必要な十分な量である。 H_2 と CO の混合ガスによる実験

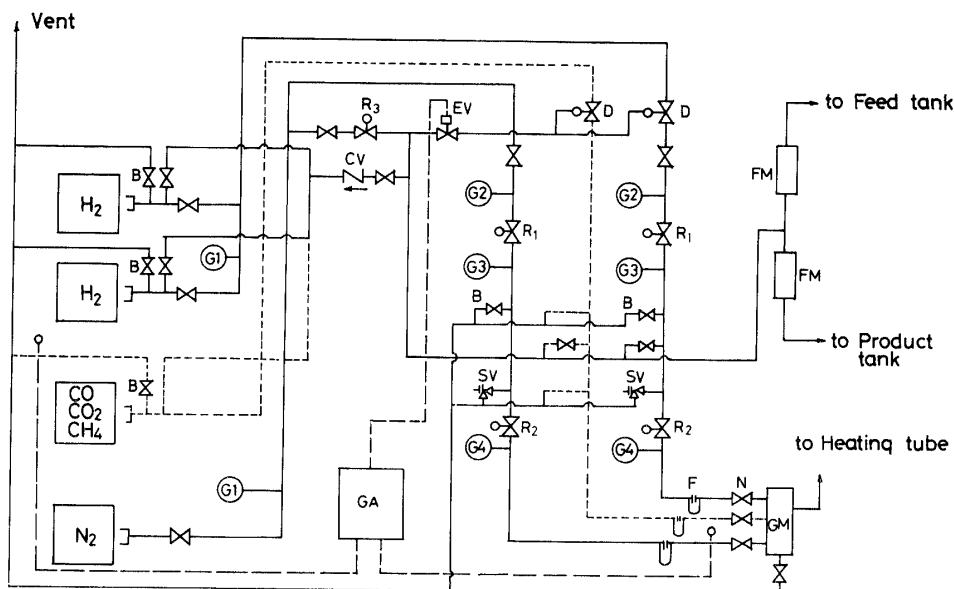
量に調整したのちガス加熱炉で加熱して反応管内に供給する。一方、試料タンクおよび反応管内に装入した固体粒子は反応管下部のテーブルフィーダーで降下させる。固体粒子と向流接触して反応したガスはガス冷却器で冷却し、つぎに水分とダストを除去したのち圧力制御弁を通して燃焼塔で燃焼後系外に排気する。反応管高さ方向に温度、圧力、ガス濃度を測定するための計測管を 7 本取り付け非定常および定常状態におけるそれらの値を測定する。この装置の平面配置図を第 2 図に示す。この装置は安全性と作業性の観点からカードル室、実験室、計測制御室の 3 つに区分している。

2.3 各部の構成と機能

2.3.1 ガス供給装置

ガスの供給装置系統図を第 3 図に示す。 H_2 , N_2 , $CO+CO_2+CH_4$ の 3 系列のガスの他にガス加熱管上部から定流量ポンプで水を注入することにより水蒸気を添加することも可能である。この装置において、ガス加熱管内ではガス成分相互の反応が起こるため反応管のガス吹込口でのガス組成はガス加熱管の入口のガス組成とは異った値をとる。本報ではガス加熱管の入口ガス組成を一定とするガス流量制御を行なう。なお、第 3 図において $CO+CO_2+CH_4$ 混合ガスの系列は H_2 ガ

ではガス間の反応による体積変化の影響を調べるためトレーサーとして還元ガス中に N_2 を 2~3% 添加して実験を行なう。また, N_2 は昇温用, パージ用圧力制御弁作動用, 実験終了後の試料冷却用ガスとして使用する。



第3図 ガス供給装置系統図

B. 放出弁 CV. 逆止弁 D. 緊急シャ断弁 EV. 三方電磁弁 F. オリフィス流量計 FM. 浮子式流量計 G₁₋₄. 圧力計 GA. ガス検知警報器 GM. ガス混合器 N. 流量調節弁 R₁₋₃. 減圧弁 SV. 安全弁

第2表 所要ガス量の計算値

ガス種	H ₂		CO		H ₂ /CO=70/30	
反応管出口温度 (°C)	550	700	550	700	550	700
平衡濃度 (%)	20	30	50	40	—	—
所要ガス量 (Nm ³ /t-Fe)	3000	2000	1200	1500	2460	1850

2.3.2 ガス加熱管および反応管

ガス加熱装置と移動層反応装置の概略図を第4図に示す。これら装置占有面積の縮小と熱交換効率を高めることを目的としてガス加熱管と反応管は逆h型の構造とした。高温高圧ならびに酸化還元雰囲気条件に耐える材質として両管には 27Cr-50Ni-W 耐熱鋳鋼 (“SUPER”-22H) を、また、その連結部には加熱による応力緩和などを考慮して、20Cr-30Ni 耐食鋳鋼 (INCOLLOY 800) を使用した。反応管の内径 0.129 m, 有効長 2 m, ガス加熱管の内径 0.12 m, 有効長 3.4 m, 連結部の内径 0.05 m で肉厚はいずれも 20 mm である。この反応管径はガスおよび固体の流れに及ぼす管壁の影響を小さくするため粒子径の約 10 倍となるように定めた。

反応管の肉厚は内径基準の計算式 (3) 式に基づいて決定した。なお、この場合、耐用時間を 1,000 hr と考え、管材の引張強度を 10,000 hr クリープ強度として計算している。

$$t = \frac{P D_i}{200 \sigma \times \eta - 2 P (1-k)} + \alpha \quad (3)$$

* H_2 約 600 Nm³, $CO+CO_2+CH_4$ 約 120 Nm³, 合計約 720 Nm³ となる。

ここで,

t : 最小肉厚, mm

P : 最高使用圧力, kg/cm^2

D_i : 管内径, mm

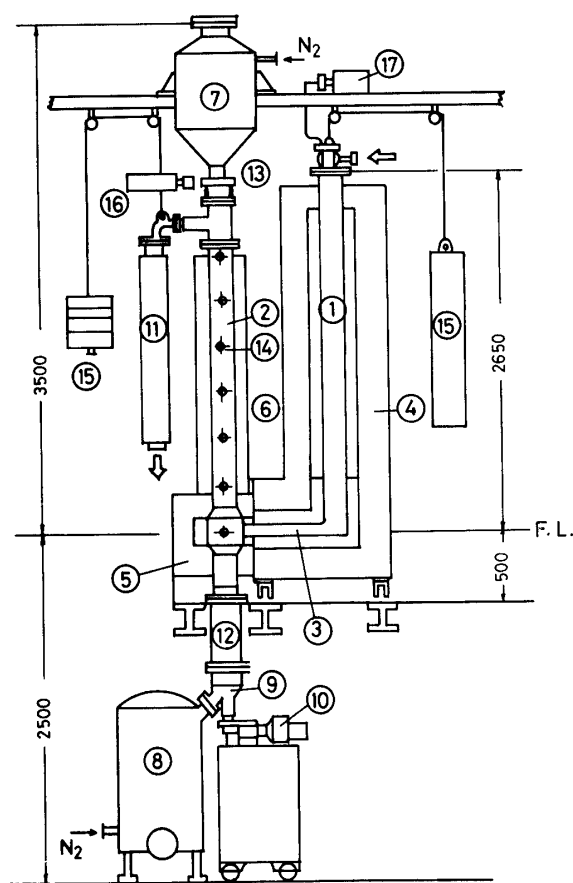
σ : 管材の引張強度, kg/mm^2

x : 引張強度に対する許容応力の割合 ($=0.25$)

η : 溶接継手効率 ($=1$)

k : 温度による定数 (620°C 以上で 0.7)

α : くされしろ ($=0$)



第 4 図 ガス加熱装置と移動層反応装置

1. ガス加熱管 2. 反応管 3. 連結管 4. ガス加熱炉 5. 保温炉 6. 断熱材 7. 試料タンク 8. 製品タンク 9. テーブルフィーダー 10. リングコーンと減速機 11. ガス冷却器 12. 固体冷却器 13. 伸縮継手 14. 計測管 15. おもり 16. 空気シリンダー 17. 定流量ポンプ

位置とした。径方向に温度分布の存在することが考えられるが本装置のような断熱型移動層においては径方向の温度差は極めて小さいことが常圧下の実験⁵⁾で知られており前述の測温位置はそのレベルにおける代表温度とみなすことができる。また、実験回数の増加によって熱電対の指示値の変化が考えられるので定期的に検定を行なった。

2.3.4 試料の供給および排出装置

実験に際し試料タンクおよび反応管内に装入した固体試料は反応管下部のテーブルフィーダーで排出する。試料および製品タンクの容量はそれぞれ 0.2m^3 と 0.25m^3 であり、実験操作中はタンク

この装置はガス吹込口の構造と逆 h 型の構造に特徴をもつ、すなわち、ガス吹込口は 2 重管構造とし、内管の同一レベルの円周方向に計 40 個 (孔径 5mm) の穴を設けており、それらの穴を通して還元ガスを吹き込むので、吹込口近傍のガス流れならびに温度分布は断面均一の条件に近いものとなる。また、逆 h 型の構造を採用することにより占有面積を小さく、熱交換効率を高くすることができる。連結管にかかる負荷はガス加熱管と等重量のおもりでバランスさせることにより緩和する。試料タンクは架台に固定しているため反応管の熱膨張による伸びは中間に取り付けた伸縮継手によって吸収させた。各継手のガスケット材として、低温部はテフロン材、高温部は銅材のガスケットを使用した但其の気密性は良好であった。

2.3.3 ガス加熱炉および保温炉

ガス加熱炉および保温炉は第 4 図内に示されている。ガス加熱は SiC 発熱体を有する電気炉を使用し、方式としてはガス加熱炉とガス吹込口までの温度降下を補償する保温炉とによる 2 段加熱方式により行なった。ガス加熱炉は移動式割形炉で、3 回路に区分し、おのおの独立に温度制御できる構造とした。温度測定には温度制御用および管内測温用ともに CA シース熱電対を使用した。管内測温位置は管内壁より 5mm 内部に入った位置

内の圧力が実験圧力と等しくなるため試料の追加装入は行なうことができない。したがって試料タンクの容量が実験時間の制約条件の一つとなる。

本装置反応管の場合、酸化鉄ペレットの排出速度の範囲はおよそ $0.024 \sim 0.072 \text{ ton pellets/hr}$ となる⁵⁾。この下限 $0.024 \text{ ton pellets/hr}$ は棚吊りの起き易い降下速度であり、上限 $0.072 \text{ ton pellets/hr}$ は吹込還元ガス量や製品の冷却能力により制限を受ける。酸化鉄ペレットの見掛け密度を 4 ton/m^3 、層の空隙率を 0.4 と仮定すれば管内試料降下速度の範囲は $0.75 \sim 2.24 \text{ m/hr}$ となる。試料降下時間を 6 hr としても最大降下速度で 0.18 m^3 のタンク容量となるので本装置ではその体積を 0.2 m^3 とした。

テーブルフィーダの構造と寸法を第5図に示す。その性能については4.1で述べる。

2.3.5 ガスと固体の冷却装置

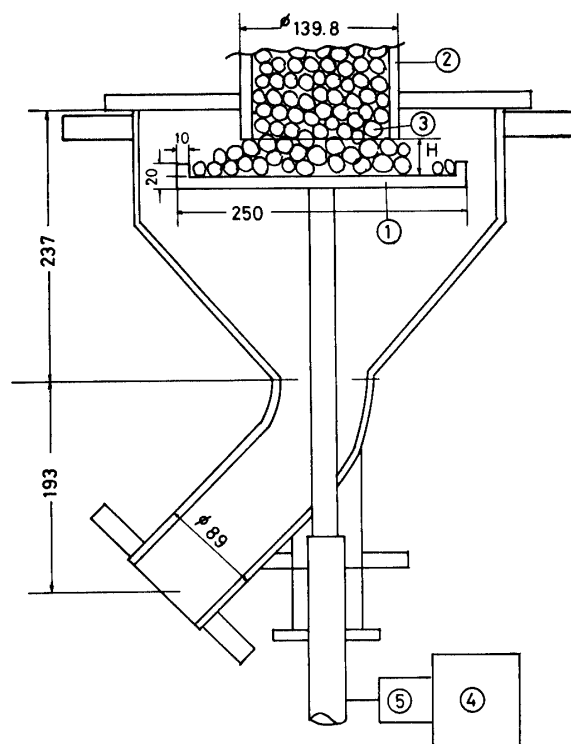
第4図に示したように反応管下部と上部においてそれぞれ製品固体と反応後ガスの冷却が必要となる。前者の場合は2重管(長さ 0.5 m) による水冷却、後者の場合は多管式熱交換器により水冷却を行なう。ガス冷却は 700°C 、 $180 \text{ Nm}^3/\text{hr}$ の空気を 20°C 、 $1.2 \text{ m}^3/\text{hr}$ の冷却水で 50°C まで下げるように設計した。冷却器の重量と等荷重のおもりでバランスさせ応力を緩和している。

2.3.6 圧力制御装置

反応管内の圧力制御は第1図に示したように、ガス加熱炉入口の圧力を検出し、圧力および流量範囲に応じて2種類の自動制御弁によって定値制御を行なう。なお、この装置においては圧力制御弁へのダストおよび水分の付着がトラブルの原因となるので圧力制御弁以前の系路でその捕集を行なっている。

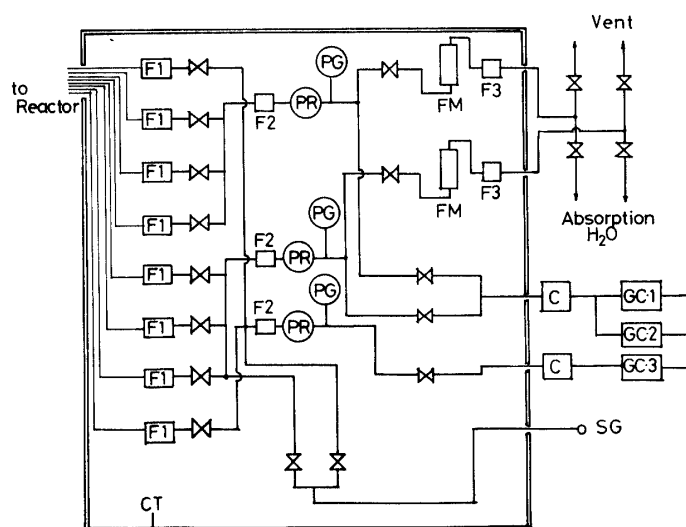
2.3.7 ガスサンプリングおよびガス分析装置

ガス加熱管入口、反応管軸方向各点の位置(合計7ヶ所)ならびに還元後ガス出口のガスをサンプリング装置を通してガス分析装置に導くが、サン



第5図 テーブルフィーダ

1. ターンテーブル 2. 反応管 3. 試料 4. リングヨーク (4~20 rpm) 5. 減速機 (1/20)



第6図 ガスサンプリング装置系統図

- C. 電子クーラー CT. 恒温槽 F₁₋₃. フィルター (1: 40μ , 2: 10μ , 3: 2μ) FM. 浮子式流量計 GC. ガスクロマトグラフィー PR. 減圧弁 PG. 圧力計 SG. 標準ガス

リングに際し, (1) 水蒸気を含むガス採取によるサンプリング管の加熱保温, (2) 高圧状態の減圧化, (3) 採取ガス中のダスト除去, (4) 多数個の測定個所の切替え操作, などが必要となる. サンプリング装置の系統図を第6図に示す. 各位置からの採取管はシースヒータとアルミナファイバーで加熱保温し, 第6図の装置内に導入する. この装置は通常 130°C に加熱制御されている恒温容器内に内蔵されたものであり, 測定時間短縮のため3系列に分けている. 分析機器への導入と他採取管内ガス置換のためのパージは並列的に行ない, バルブ操作によって経路変更を行なう. H_2 , CO , CO_2 , CH_4 , N_2 ガスはガスクロマトグラフィーで, また, 水蒸気は濃硫酸への吸収法で測定する. 水蒸気の分析はガスクロマトグラフィーによっても可能であるが予備実験の結果, ばらつきも大きく, 精度が悪いため吸収法を採用した.

なお, 水蒸気も含む多成分系のガスを高速でしかも精度よく分析する方法としてプロセス用質量分析計が最適であり, 本ガスサンプリング装置は質量分析計用の前処理機能を有している.

2.3.8 保安機器

高温高圧装置で, 可燃性, 有毒ガスを使用するので, 保安のためにつぎのような自動停止機構を備えている. すなわち, 温度 (上限設定), 圧力 (上下限設定), ガスもれの3種類の検出端に対して操作端は通電停止と可燃有毒ガス停止の2種類である. 異常検出に対しては自動的に操作端が作動する合計6つのシャットダウンシーケンスを組み込んでいる. また, 第2図に示すような装置の配置とし, 実験室と計測制御室との間には厚さ 20cm, 高さ 2.5m の鉄骨コンクリート製の防護壁を設けている. さらに, ガスもれ対策としてガス加熱装置および移動層反応装置の周囲は鉄板で囲い, 大容量のブロワーで排気し, 1min 以内で装置周囲の換気を可能としている.

なお, 本装置は高圧ガス取締法第5条第1項の規定*および建築基準法第48条第3項の規定**に抵触するので地方自治体の承認ならびに許可を得ている.

3. 試料および実験方法

3.1 試料

直接製鉄用原料として鉄品位の高いこと, りんやいおうの含有量が少いこと, 被還元性や高温性 (還元粉化性, クラスタリングなど) が良いことなどが要求されている¹⁴⁾. また, 本装置においては1回の実験で約 400kg という比較的多量の原料を必要とするので選択すべき試料の検討を行なった. 本報では高炉装入用に作られたものであるが比較的鉄品位が高く, 高温性状の良いワイヤラベレットを使用することとした. その化学分析値を第3表に示す. このベレットのうち $\pm 1\text{mm}$ の粒度範囲のものを実験に使用した.

第3表 ワイヤラベレットの化学分析値

成分	T・Fe	FeO	CaO	SiO ₂	Al ₂ O ₃	MnO	MgO
wt%	64.60	0.26	0.26	3.71	2.18	0.66	0.14

3.2 実験方法

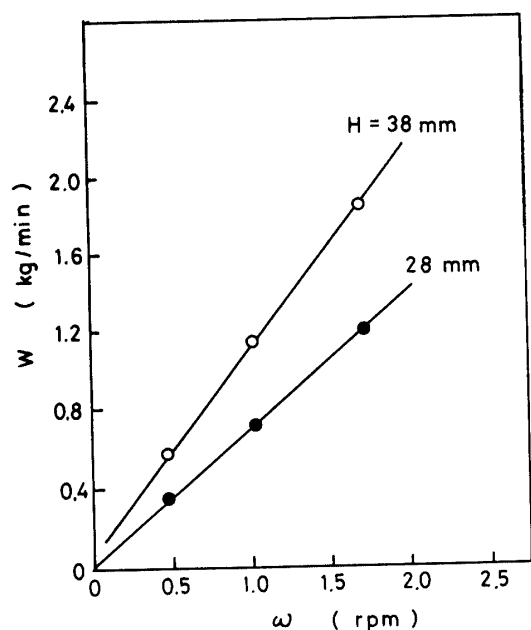
本実験の目的は定常状態における反応管内の各種情報を得ることであり, 酸化鉄ベレットの還元反応における主な実験操作は次の手順により行なった.

(1) 反応管内にベレットを装入し, 固定層とする.

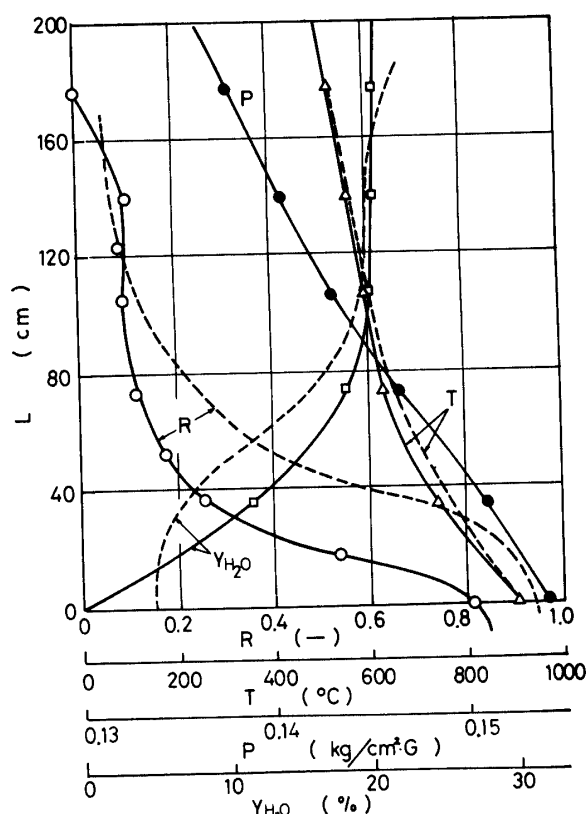
* 昭和26年法律第204号, 容量 $30\text{ m}^3/\text{day}$ 以上の設備を利用して高圧ガスの製造を行なう場合県の承認が必要.

** 住居区域で常時貯蔵する場合の制限ガス量は圧縮ガスの場合 $7000/20=350\text{ m}^3$ 以内, 可燃性ガスの場合 $700/20=35\text{ m}^3$ 以内であり, それを越える場合は市の建築許可が必要. 本装置ではカードル室が該当する.

14) 金子伝太郎, 木村吉雄, 小野田 守, 藤田勇雄: 鉄と鋼, **63** (1977), 2269.



第7図 テーブル回転速度と酸化鉄ペレット排出速度との関係



第8図 移動層による水素還元反応操作におけるプロセス変数の管内軸方向分布
 ——本実験,柳谷ら⁵⁾
 実験条件: $T=910^{\circ}\text{C}$, $P_{\text{H}_2}=0.15$
 $\text{kg/cm}^2\text{G}$, $G=860 \text{ NL/min}$, $W=0.58$
 kg/min , $d_p=1.2\sim 1.4 \text{ cm}$

(2) ガス加熱炉に通電し, 昇温しながら約 500 NL/min の空気を流通し, 反応管内温度も同時に昇温する。

(3) 反応管軸方向の温度分布が定常状態の予測値に近づいた場合, テーブルフィーダを始動してペレットを降下させる。また, 空気を N_2 ガスに切替えて循環させる。

(4) N_2 ガスを徐々に反応ガスに切替える。

(5) 昇圧操作を行ない, 所定の圧力に設定する。

(6) 定常状態に到達後, 反応管高さ方向の温度, 圧力, ガス組成などのデータを採取する。

(7) 通電, 還元ガス, テーブルフィーダを停止して固定層状態, N_2 ガス雰囲気中で冷却する。

(8) 冷却後試料タンク上部より吸い上げ方式により各レベルの試料を採取する。

(9) 採取した試料の還元率, 物理性状(粉化, 膨脹率, 強度など)を測定する。

なお, 還元率は採取した $50\sim 60$ 個試料の固定層による還元を行ない, その酸素除去量と未還元試料の化学分析値から算出した。還元条件は温度 1050°C , $100\%\text{H}_2$, ガス流量 20 NL/min , 還元時間 60 min である。

4. 実験結果

4.1 テーブルフィーダの性能試験

$1.2\sim 1.4 \text{ cm}$ の粒度範囲のワイヤラペレットを使い, 反応管とテーブルの間隔 H をパラメータにとった場合のテーブル回転速度 ω とペレット排出速度 W との関係を第7図に示す。第7図によれば排出速度は回転速度に比例し, H の大きいほど大きいことがわかる。この検量線に基づいて排出条件を定めて実験を行なった。

4.2 総括伝熱係数の測定

本装置の反応管は断熱材で被覆した断熱型となっている。炉壁からの熱損失の評価においても, また, 熱収支を考慮した移動層の数式モデルによる解析⁷⁾ においても必要とされる総括伝熱係数 U の値は, 固定層状態で測定した反応

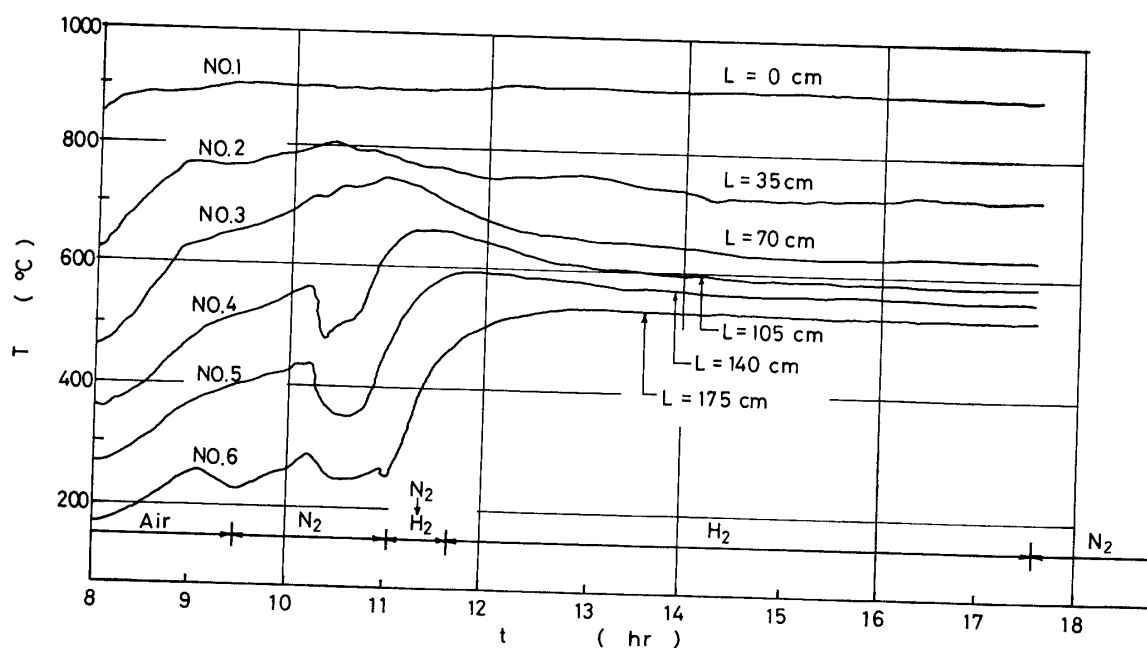
第4表 常圧下の水素還元反応操作における本実験と柳谷ら⁽⁵⁾の装置および実験条件

項 目	柳谷ら ⁽⁵⁾	本 実 験
反 応 管 径 (mm)	125	129
反応管有効長さ (mm)	1800	2000
最高使用圧力 (kg/cm ² G)	0.5	8.0
ガス加熱方式	内熱式+外熱式	外熱式
使用 ガ ス	H ₂	H ₂ , CO
ガス吹込口保温炉	無	有
排 出 機 構	テーブルフィーダ	テーブルフィーダ
ペレット銘柄	神鋼塩基性	ワイヤラ
ペレット直径 (mm)	10~12	10~12
吹込ガス温度 (°C)	900	908
同 ガス流量 (Nl/min)	900	860
同 ガス組成	100% H ₂	100% H ₂
同 圧 力 (kg/cm ² G)	0.03	0.15
試料降下速度 (kg/min)	0.63	0.58

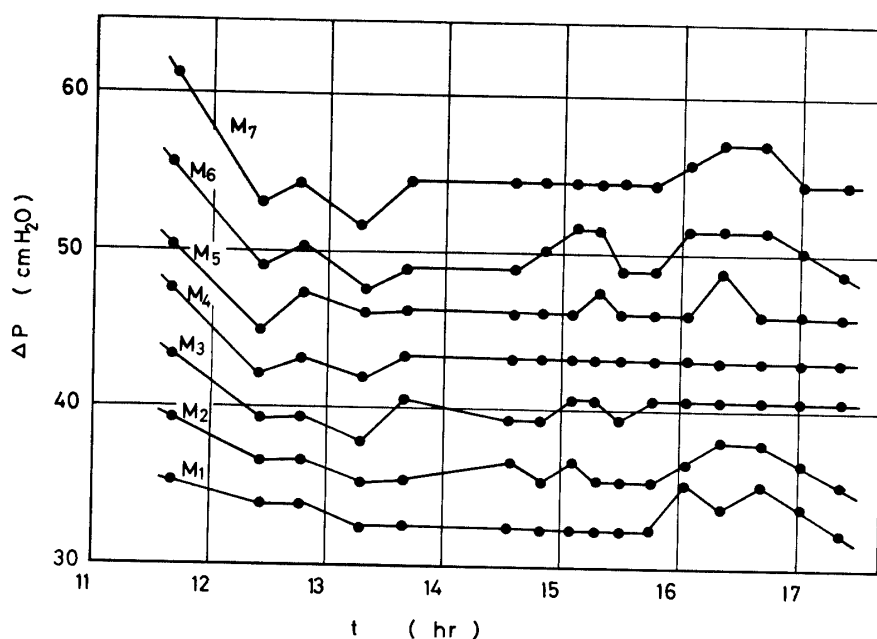
管軸方向および半径方向の温度分布より, 志垣ら¹⁵⁾によって導かれた式に基づいて決定した. 酸化鉄ペレット-空気系で得られた本装置の U の値は $U=2.14\text{kcal/m}^2\cdot\text{hr}\cdot^\circ\text{C}$ となり, 大森ら⁷⁾によって得られた値に近く, 比較的断熱性の良い装置であるといえる.

4.3 還元実験結果の一例

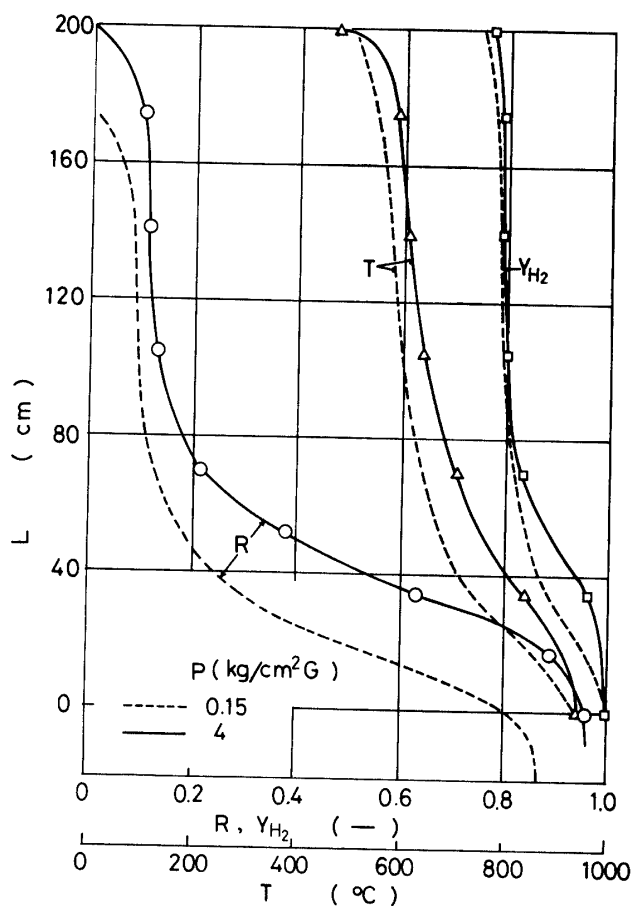
H₂ 100%, 圧力 $P=0.15\text{kg/cm}^2\text{G}$, 吹込ガス温度 $T=910^\circ\text{C}$, ガス流量 $G=860\text{Nl/min}$, ペレット降下速度 $W=0.58\text{kg pellets/min}$ の条件における実験の主要な炉内プロセス変数の軸方向分布を第8図に示す. 第8図の還元率分布をみれば, 層下部で急速に反応が進んでいるにもかかわらず, 層上部での反応は還元率 10~20% 前後で停滞している. これは本条件下のガス組成からみて, シャフト炉の酸素交換操作線¹⁶⁾における操作線が M 点に近いたためである. これが吸熱反応の影響



第9図 移動層により水素還元反応の操作における反応管内温度の経時変化 (第8図と同一の実験)



第10図 移動層による水素還元反応操作における反応管内圧力損失の経時変化
(ガス加熱管入口基準, 第8図と同一の実験)



第11図 移動層による水素還元反応操作におけるプロセス変数の分布に及ぼす圧力の影響

実験条件: $T = 910^{\circ}\text{C}$, $P_{\text{H}_2} = 4 \text{ kg/cm}^2 \cdot \text{G}$, $G = 860 \text{ NI/min}$, $W = 0.58 \text{ kg/min}$, $d_p = 1.2 \sim 1.4 \text{ cm}$

と合わせて水素還元反応操作の一つの限界となる。

本実験と同様の実験は柳谷ら⁵⁾によっても行なわれているが第8図にはその結果も示している。柳谷らによる実験と本実験の条件を比較して第4表に示したが試料銘柄が異っているほかは装置規模、実験条件ともにほぼ類似した条件である。両者を比較した場合、炉内温度分布はほぼ一致しているがガス濃度ならびに還元率分布が異っている。これは使用した試料の被還元性の相異を反映したものといえる。

この実験において定常状態に至るまでの温度と圧力分布の経時変化はそれぞれ第9図と第10図に示す。第9図は昇温からガス切替えを経て定常状態に至るまでの変化を示しているが、この非定常状態での実験操作技術ならびに定常状態における各種炉内情報を得るのが本実験の主な目的となる。ガス切替え前に急激な温度変化のあったことを示しているがこれはNo.3とNo.4レベル間に棚吊りがあったためである。この実験では昇温開始から N_2 ガスによる冷却開始までの所要時間は18hr、還元ガス切替え後 N_2 ガスによる冷却まで約6hr要し

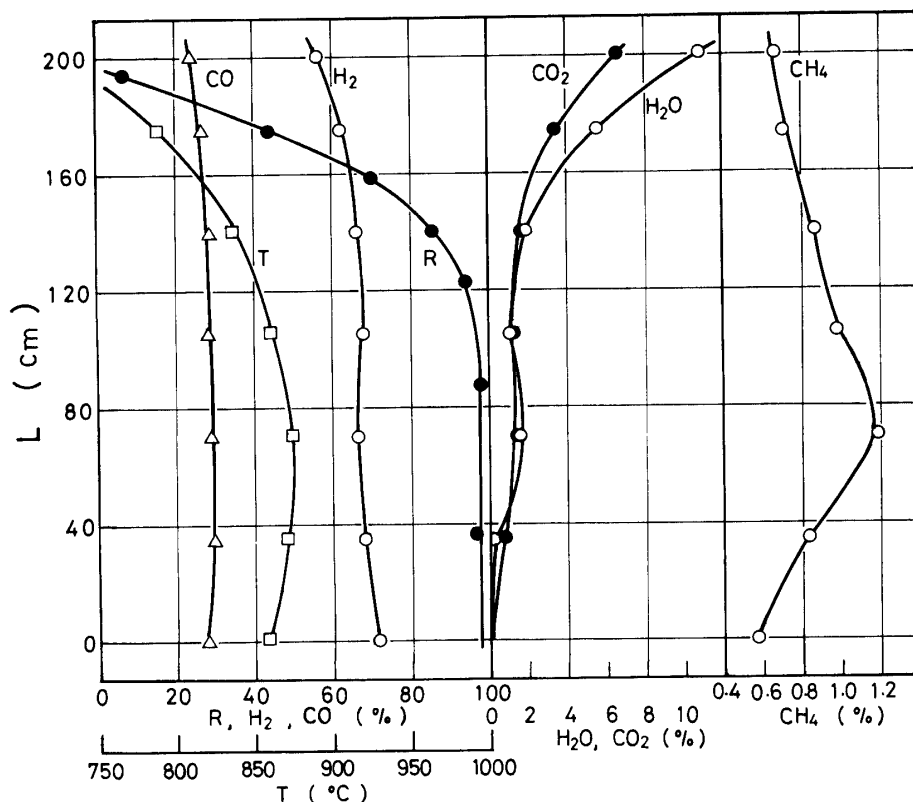
ている。

第10図はガス加熱管入口を基準にした場合の各レベルの圧力変化である。第9図と比較しても明らかなように温度分布に対応して炉内圧力分布も定常状態になっていることがわかる。

第8図と同一の条件で圧力だけを $4\text{kg/cm}^2\text{G}$ に上げた場合の炉内プロセス変数の軸方向分布を第11図に示す。圧力の効果により還元速度が向上したために還元率 R 、水素濃度 Y_{H_2} も層上部にシフトした分布となった。また、層下部においては高還元率となったために吸熱反応の影響が消失し、温度分布も吹込ガス温度に近い分布となった。層全体の圧力損失も $0.15\text{kg/cm}^2\text{G}$ (第8図) の場合 $22.9\text{cmH}_2\text{O}$ であったものが $4\text{kg/cm}^2\text{G}$ では $5.9\text{cmH}_2\text{O}$ と減少した。これは流動化開始速度が吹込ガス量の限界である場合、大量のガス吹込が可能であることを意味している。

吹込ガス組成 H_2 70%- CO 30% の混合ガス、同温度 $T=860^\circ\text{C}$ 、同圧力 $P=0.2\text{kg/cm}^2\text{G}$ の条件における炉内プロセス変数の分布を第12図に示す。これは第8図の条件と比較して吹込ガス温度が約 50°C 低いにもかかわらず還元反応が急速に進み、レベル 100cm の層中間位置で還元反応がほぼ完結している。このように著しく能率が向上したのは炉内温度分布が高くなったためである。水素還元反応操作と比較して高い温度分布を示すのは CO ガスによる発熱反応とメタン生成による発熱反応の影響によるものである。レベル 70cm の位置で最高温度を示しているがこれは同一レベルにおけるメタン濃度の値と対応しており、メタン生成による発熱が原因と考えられる。また、メタンはガス加熱管内でも生成していることがわかる。炭素析出についてはガス吹込口近傍のペレットにのみ炭素の付着していることが認められている。これらが H_2 と CO の混合ガスによる還元反応操作の大きな特徴と考えられ、この影響は圧力が高いほどさらに拡大される。

以上のように本装置を用いた実験においては当初の概念設計で考慮した範囲の実験操作を遂行することが可能であり、移動層反応装置の特徴を表わすプロセス変数の挙動に対し、正確な情報の得



第12図 移動層による H_2 - CO 混合ガス還元反応操作におけるプロセス変数の管内軸方向分布
 実験条件: $T=860^\circ\text{C}$, $P_T=0.2\text{kg/cm}^2\text{G}$, $\text{H}_2/\text{CO}=70/30$,
 $G=900\text{NI/min}$, $W=0.57\text{kg/min}$, $d_p=1.4\sim 1.6\text{cm}$

られることが明らかとなった。

5. 結 言

高温高圧気相反応装置を試作し、その性能についての実験を行ない、次の知見を得た。

- (1) 当初の設計諸元に基づいて小型高圧移動層反応装置を製作することができた。
 - (2) 温度、圧力、ガス組成および流量、原料の装入速度等広範囲に変化させた条件下での実験が可能であることを確認した。
 - (3) 本装置を用いて、圧力、ガス組成、温度の異なる条件下で酸化鉄ペレットの還元実験を行なった。その結果、還元反応に及ぼすそれら操作条件の影響を的確に把握することが可能であり、得られた結果は反応操作解析に適用できることが明らかとなった。
 - (4) 本装置は直接製鉄用原料の評価に関する基礎研究にも使用できることがわかった。
- なお、現在本報の実験と同時に移動層シミュレーション数式モデルによる理論的検討ならびに単一粒子の反応速度パラメータの決定、高圧下での還元機構の解明、原料開発等の基礎研究も平行して進めているがそれらの結果については逐次報告する予定である。

本装置は文部省特別設備費により製作され、1978 年 11 月に完成したものである。設備費、維持管理費を支給された文部省ならびに御協力いただいた新日本製鉄(株)、日鉄建材(株)、東伸製鋼(株)に御礼申し上げます。

さらに、本装置の設計製作に御協力いただいた(株)キカク 鳴澤勇平氏、日本鋼管(株)福島 勤氏をはじめ(株)港北産業、日本酸素(株)東北支社、太平洋金属工業(株)、東北大江工業(株)、富士高圧ガス工業(株)、(株)小沢鉄工所の各社に、また、本装置の設計、実験の推進に御協力御助言頂いた大谷正康所長、大森康男教授、徳田昌則助教授、八木順一郎助教授、水渡英昭助教授、大同特殊鋼(株)柳谷敏夫氏、受託研究員、古藪幸夫氏(住友重機械工業(株))、井上 亮助手、石井正夫技官、昭井敏勝技官、石垣政裕大学院生、高田 稔大学院生、石川正美事務官をはじめ、協力いただいた多くの方々に厚く感謝申し上げます。